

19



Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



11 Veröffentlichungsnummer: **0 476 475 A1**

12

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

21 Anmeldenummer: **91115188.4**

51 Int. Cl.⁵: **C08J 11/06, B29B 17/02**

22 Anmeldetag: **09.09.91**

30 Priorität: **21.09.90 DE 4029886**
07.12.90 DE 4039024

43 Veröffentlichungstag der Anmeldung:
25.03.92 Patentblatt 92/13

84 Benannte Vertragsstaaten:
BE DE ES FR GB IT NL

71 Anmelder: **BAYER AG**

W-5090 Leverkusen 1 Bayerwerk(DE)

72 Erfinder: **Fennhoff, Gerhard, Dr.**
Buschstrasse 25
W-4156 Willich 2(DE)
Erfinder: **Jakob, Wolfgang, Dipl.-Ing.**
Am Domacker 81
W-4130 Moers(DE)
Erfinder: **Ehlert, Manfred, Dipl.-Ing.**
Bahnhofstrasse 39
W-4047 Dormagen(DE)
Erfinder: **Freitag, Dieter, Dr.**
Hasenheide 10
W-4150 Krefeld 1(DE)

54 **Reinigung von Polycarbonat- und Polyestercarbonatabfällen.**

57 Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist ein Verfahren zur Reinigung von Abfällen aus thermoplastischen, aromatischen Polycarbonaten und/oder aus thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonaten, die bei der Herstellung optischer Formteile, wie beispielsweise Audio Compact discs, Linsen für Brillen oder für andere optische Anwendungen, oder Lampen- bzw. Scheinwerferreflektoren, anfallen.

EP 0 476 475 A1

Audio Compact Discs werden aus aromatischen Polycarbonaten nach dem Spritzgußverfahren hergestellt. Die so erzeugten Formteile werden durch Aufdampfen von Aluminium verspiegelt und mittels vernetzender Lacke oberflächenversiegelt. Ferner werden sie mit Farbstoffen bedruckt. Zuletzt erfolgt eine Qualitätskontrolle, in der 10 Prozent bis 15 Prozent der produzierten Compact Discs aufgrund von Fehlern ausgesondert werden.

Linsen werden ähnlich wie Audio Compact Discs durch vernetzende Lacke oder auch durch Polysiloxane oberflächenversiegelt. Auch hier fallen durch die Qualitätskontrolle erhebliche Mengen Polymerabfalls an.

Lampen- oder Scheinwerferreflektoren sind Aluminiumbeschichtet. Abfälle entstehen sowohl bei der Herstellung dieser Formteile als auch nach deren Verwendung.

Diese Polycarbonatabfälle und/oder Polyester-carbonatabfälle können aufgrund ihres Aluminiumgehaltes, der Lacke und gegebenenfalls der Farbstoffe nicht durch direktes Neuverspritzen oder als Mischung mit weiteren Polymeren und/oder Polykondensaten für andere hochwertige Formteile wiederverwendet werden.

Es war deshalb Aufgabe, oben genannte Abfälle durch ein einfaches, technisch durchführbares Verfahren so aufzuarbeiten, daß die aromatischen Polycarbonate und/oder aromatischen Polyester-carbonate einer neuen Anwendung zugeführt werden können.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit ein Verfahren zur Reinigung von Abfällen aus thermoplastischen, aromatischen Polycarbonaten und/oder aus thermoplastischen aromatischen Polyester-carbonaten, die bei der Herstellung optischer Formteile, wie beispielsweise Audio Compact Discs, Linsen für Brillen oder für andere optische Anwendungen, oder Lampen- bzw. Scheinwerferreflektoren anfallen.

Das vorliegende Verfahren ist, insbesondere dadurch gekennzeichnet, daß die Polykondensatabfälle mittels eines Shredders oder einer Mühle, wie dies in der Literatur beschrieben ist (siehe beispielsweise "Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie, 4. Auflage (1972), Band 2 Verfahrenstechnik I (Grundoperationen), SS 2 -34"), zerkleinert werden, mit Säure zum Rückfluß unter Rühren erhitzt werden, mit Wasser in der Weise unter gelindem Rühren neutral gewaschen werden, daß die vom Polykondensat abgetrennten, jedoch noch nicht gelösten Lackanteile aus dem Polykondensat gespült werden, das Polykondensat nach dem Abfiltrieren des Wassers in den üblichen Trockenapparaturen, wie sie beispielsweise in "Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie, 4. Auflage (1972), Band 2, Verfahrenstechnik I (Grundoperationen), SS 699 bis 721" beschrieben

sind, getrocknet und, gegebenenfalls anschließend durch Windsichten mit Apparaten, wie sie beispielsweise in "Ullmanns Encyklopädie der technischen Chemie, 4. Auflage (1972), Band 2, Verfahrenstechnik I (Grundoperationen), SS 57 bis 69 beschrieben sind, gegebenenfalls von den noch verbliebenen Lackresten oder Farbstoffresten abgetrennt werden. In all den Fällen, in denen die Polykondensatabfälle von Natur aus keine Metalle enthalten, werden diese separat, beispielsweise als Pulver vor der Säure zugesetzt, gegebenenfalls auch in Form von Metallsalzen.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit insbesondere ein Verfahren zur Reinigung von Abfällen aus thermoplastischen, aromatischen Polycarbonaten und/oder thermoplastischen, aromatischen Polyester-carbonaten, die Metalle - gegebenenfalls in Form von Metallsalzen - , Lacke und gegebenenfalls Farbstoffe enthalten, das dadurch gekennzeichnet ist, daß man die Abfälle zu Bruchstücken eines mittleren Durchmessers von 0,1 cm bis 5,0 cm, bevorzugt von 0,5 cm bis 1,5 cm, zerkleinert, diese Bruchstücke danach mit Säure am Rückfluß unter Rühren erhitzt, danach mit Wasser unter Rühren neutral wäscht und schließlich mit Wasser solange nachspült, bis alle vom Polykondensat abgetrennten Lackanteile ausgespült sind, die Bruchstücke abfiltriert, trocknet und gegebenenfalls durch Windsichten die noch an den Bruchstücken anhaftenden Lack- und/oder Farbstoffreste abtrennt.

Überraschenderweise wurde nämlich gefunden, daß durch das Behandeln des Polykondensatabfalls mit Säure nach dem Auflösen des Metalls auch der größte Teil der Lacke sich von den Polycarbonaten abgetrennt und sogar zum Teil aufgelöst ist.

Ohne die Anwesenheit eines Metalls wie beispielsweise Aluminium tritt dieser Effekt nicht ein, da ohne Aluminium reaktive Spezies wie naszierender Wasserstoff und Aluminium-(III)-Salze nicht "in situ" gebildet werden können.

Für den erfindungsgemäßen Reinigungsprozeß geeignete Metalle sind außer Aluminium noch Eisen, Zink und Zinn. Eisen, Zink und Zinn wirken jedoch in abgeschwächter Form im Vergleich zum Aluminium.

Lacke, die sich im Sinne der vorliegenden Erfindung vom Polymer ablösen und zum Teil auflösen lassen, sind beispielsweise solche auf Polyacrylnitril-, Polyacrylat-, Polymethacrylat-, Polyvinylchlorid-, Polysiloxan- oder Melaminharzbasis.

Für den erfindungsgemäßen Reinigungsprozeß geeignete Farbstoffe sind beispielsweise solche, auf Basis von Naphthachinonen, Benzochinonen, Anthrachinonen und Azoverbindungen, sowie organische Pigmente und anorganische Pigmente wie Eisenoxide, Chromoxide und Titandioxid.

Thermoplastische, aromatische Polycarbonate im Sinne der Erfindung sind Polycarbonate, die nach den üblichen, in der Literatur bekannten Methoden aus Diphenolen und Carbonat spendern hergestellt worden sind. (Siehe beispielsweise "H. Schnell, Chemistry and Physics of Polycarbonates, Interscience Publishers, New York, 1964", US-Patent 3 028 365 und deutsche Offenlegungsschrift 3 832 396 (Le A 26 344).

Diphenole für solche Polycarbonate können beispielsweise

Hydrochinone,

Resorcine,

Dihydroxydiphenyle,

Bis-(hydroxyphenyl)-alkane,

Bis-(hydroxyphenyl)-cycloalkane,

Bis-(hydroxyphenyl)-sulfine,

Bis-(hydroxyphenyl)-ether,

Bis-(hydroxyphenyl)-ketone,

Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone,

Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide,

α, α' -Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropylbenzole,

sowie von deren kernalkylierte und kernhalogenierte Verbindungen sein.

Bevorzugte Diphenole sind z.B.:

4,4'-Dihydroxydiphenyl,

2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan,

2,4-Bis-(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan,

1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-p-diisopropylbenzol,

2,2-Bis-(3-methyl-4-hydroxyphenyl)-propan,

2,2-Bis-(3-chlor-4-hydroxyphenyl)-propan,

Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-methan,

2,2-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-propan,

Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-sulfon,

2,4-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan,

1,1-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-p-diisopropylbenzol,

2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan,

2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan und

1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan.

Besonders bevorzugte Diphenole sind z.B.:

2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan,

2,2-Bis-(3,5-dimethyl-4-hydroxyphenyl)-propan,

2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan,

2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan,

1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan und

1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-3,3,5-trimethylcyclohexan.

Es können auch beliebige Mischungen der vorgenannten Diphenole verwendet worden sein.

Die Diphenole sind entweder literaturbekannt oder nach bekannten Verfahren herstellbar.

Aromatische Polyester-carbonate im Sinne der Erfindung sind solche, die aus mindestens einem aromatischen Bisphenol, aus mindestens einer aromatischen Dicarbonsäure und aus Kohlensäure

aufgebaut sind. Geeignete Diphenole sind die vorstehend aufgeführten. Geeignete aromatische Dicarbonsäuren sind beispielsweise Orthophthalsäure, Terephthalsäure, Isophthalsäure, tert.-Butylisophthalphthalsäure, 3,3'-Diphenyletherdicarbonsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, 4,4'-Diphenyletherdicarbonsäure, 4,4'-Benzophenondicarbonsäure, 3,4'-Benzophenondicarbonsäure, 4,4'-Diphenylsulfondicarbonsäure, 2,2-Bis-(4-Carboxyphenyl)-propan, Trimethyl-3-phenylindan-4,5'-dicarbonsäure.

Von den aromatischen Dicarbonsäuren werden besonders bevorzugt die Terephthalsäure und/oder Isophthalsäure eingesetzt.

Die aromatischen Polyester-carbonate können nach Verfahren hergestellt worden sein, wie sie für die Polyester-carbonatherstellung aus der Literatur bekannt sind, so z.B. nach Verfahren in homogener Lösung, nach Schmelzumesterungsverfahren, und nach dem Zweiphasengrenzflächenverfahren.

Aromatische Polycarbonate beziehungsweise aromatische Polyester-carbonate im Sinne der vorliegenden Erfindung sind solche, deren Zahlenmittel M_n zwischen 5000 und 15000 liegen, vorzugsweise zwischen 7000 und 13000, ermittelt durch Gelpermeationschromatographie mit Polystyrol als Eichsubstanz.

Säuren im Sinne der vorliegenden Erfindung sind wäßrige Mineralsäuren wie beispielsweise Halogenwasserstoffsäuren, wobei Halogen Chlor, Brom oder Iod sein kann, Perchlorsäure, Phosphorsäure oder Schwefelsäure. Säuren im Sinne der vorliegenden Erfindung sind auch organische Säuren wie beispielsweise Ameisensäure und Essigsäure.

Für nicht metallisierte lackierte Polykondensat-abfälle geeignete Metallsalze/Säure-Kombinationen sind beispielsweise Lösungen von Aluminium-(III)-halogeniden in wäßrigen Halogenwasserstoffsäuren, wobei Halogen Chlor, Brom oder Iod sein kann, oder Halogenwasserstoffsäuren zusammen mit Aluminiumpulver.

Besonders bevorzugte Säuren sind Halogenwasserstoffsäuren und Essigsäure.

Die Konzentrationen der Säuren in Wasser liegen zwischen 1 Gewichtsprozent bis 37 Gewichtsprozenten, bevorzugt zwischen 10 Gewichtsprozenten bis 15 Gewichtsprozenten, bezogen auf das Gesamtgewicht der Lösung aus Säuren und Wasser.

Die Zeit für das Erhitzen unter Rückfluß beträgt im allgemeinen zwischen 20 Minuten und 180 Minuten. Die Trocknung der abfiltrierten Bruchstücke erfolgt bei Temperaturen von 100 °C bis 120 °C. Die gegebenenfalls durch Windsichten noch gereinigten Polykondensatbruchstücke sind nach den üblichen Spritzguß- oder Extrusionsverfahren wieder zu technisch brauchbaren Polycarbonatform-

körpern beziehungsweise Polyestercarbonatformkörper verarbeitbar.

Sie lassen sich darüber hinaus mit anderen Kunststoffen, vorzugsweise mit Acrylnitril/Butadien/Styrol-Pfropfpolymerisaten (ABS) und/oder mit Styrol-Acrylnitril-Copolymerisaten (SAN) zu brauchbaren Mischungen verarbeiten.

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit auch die Verwendung von Recyclaten thermoplastischer, aromatischer Polycarbonate und/oder thermoplastischer, aromatischer Polyestercarbonate zur Herstellung von Mischungen mit anderen Kunststoffen, bevorzugt zur Herstellung von Mischungen mit ABS und/oder mit SAN.

Beispiele

A. Die für die folgenden Versuche eingesetzten Compact Disc-Abfälle (Polycarbonat mit Aluminium bedampft und Lack überzogen) wurden zuvor mit Hilfe eines Shredders zu einer Teilchengröße von 1 mm bis 15 mm zerkleinert. Die so erhaltene Shredderware enthielt insgesamt 0,35 Gewichtsprozent Lack (vernetztes Polyacrylnitril und vernetztes Polyvinylchlorid) und Aluminium.

Die relative Lösungsviskosität des Polycarbonats der Shredderware nach mechanischer Abtrennung von Lacken und Aluminium (Vergleichssubstanz) (0,5 g Polycarbonat in 100 ml Dichlormethan bei 23 °C) betrug 1,196.

Beispiel 1

Zu 450 g einer 10 %igen Salzsäurelösung werden 300 g der oben genannten Compact Disc-Shredderware unter Rühren gegeben und 35 Minuten bis zum Sieden erhitzt, so daß das gesamte Aluminium und Teile der Lacke gelöst sind und die noch verbliebenen Lackreste sich vom Polycarbonat abgelöst haben. Nach dem Entfernen der Salzsäure wäscht man das Polycarbonat mit destilliertem Wasser neutral und spült dabei die zurückgebliebenen Lackreste aus. Nach dem Abfiltrieren des Polycarbonats trocknet man das Polykondensat bei 120 °C und trennt letzte Lackreste durch Windsichten im Stickstoffstrom ab.

Relative Lösungsviskosität des Polycarbonats nach dem Windsichten 1,194 (0,5 g Polycarbonat in 100 ml Dichlormethan bei 23 °C).

Beispiel 2

In einem 500 l Emailliekessel mit angeflanschem Filter und Flotationsablauf werden 100 kg des unter A. bezeichneten Polycarbonatabfalls vorgelegt. Der Kessel wird evakuiert und anschließend mit Stickstoff gespült. Der Gasaustausch wird wei-

tere zweimal wiederholt und schließlich mit 15 m³ Stickstoff pro Stunde beschleiert. Zum Kesselinhalt gibt man 160 kg 10prozentige Salzsäure, heizt unter Rühren auf 90 °C auf und hält 1 Stunde bei dieser Temperatur. Danach wird auf 30 °C abgekühlt und die Salzsäure abgelassen. Das im Kessel verbliebene Polycarbonat wird mit dreifach entsalztem Wasser säurefrei gewaschen, wobei die vom Polycarbonat abgelösten Lackrückstände entfernt werden. Das Polycarbonat wird zuletzt bei 120 °C getrocknet, auf das Windsichten wird verzichtet.

Relative Lösungsviskosität des Polycarbonats nach dem Windsichten 1,193 (0,5 g Polycarbonat in 100 ml Dichlormethan bei 23 °C).

B. Die für die folgenden Versuche eingesetzten Polycarbonat-Abfälle (Polycarbonat mit Lack überzogen) wurden zuvor mit Hilfe eines Shredders zu einer Teilchengröße von 1 mm bis 15 mm zerkleinert. Die so erhaltene Shredderware enthielt insgesamt 0,5 Gewichtsprozent Lack (auf Polysiloxan- und Melaminharzbasis).

Die relative Lösungsviskosität des Polycarbonats der Shredderware nach mechanischer Abtrennung der Lacke (Vergleichssubstanz) (0,5 g Polycarbonat in 100 ml Dichlormethan bei 23 °C) betrug 1,279.

Auf das Windsichten wurde bei in den Beispielen 3 bis 6 verzichtet.

Beispiel 3

Wie Beispiel 1, aber mit 300 g des unter B. angegebenen Polycarbonatabfalls und 0,5 g Aluminium.

Eine Lösung des getrockneten und gereinigten Polycarbonats (50 g Polycarbonat in 100 ml Dichlormethan) enthält noch 1/10 des Lackteils, den eine Vergleichslösung des Ausgangsmaterials (50 g Polycarbonatabfall in 100 ml Dichlormethan) aufweist.

Relative Lösungsviskosität des Polycarbonats 1,277 (0,5 g Polycarbonat in 100 ml Dichlormethan bei 23 °C).

Beispiel 4

Wie Beispiel 1, aber mit 300 g des unter B. angegebenen Polycarbonatabfalls, 450 g 10%ige Salzsäurelösung und 1,5 g Aluminiumpulver.

Eine Lösung des getrockneten und gereinigten Polycarbonats (50 g Polycarbonat in 100 ml Dichlormethan) enthält noch 1/10 des Lackanteils, den eine Vergleichslösung des Ausgangsmaterials (50 g Polycarbonatabfall in 100 ml Dichlormethan) aufweist.

Relative Lösungsviskosität des Polycarbonats 1,277 (0,5 g Polycarbonat in 100 ml Dichlormethan bei 23 °C).

Beispiel 5

Wie Beispiel 1, aber mit 300 g des unter B. angegebenen Polycarbonatabfalls, 450 g 10%ige Salzsäurelösung und 7,3 g Aluminium-(III)-chlorid.

Eine Lösung des getrockneten und gereinigten Polycarbonats (50 g Polycarbonat in 100 ml Dichlormethan) enthält noch 1/5 des Lackanteils, den eine Vergleichslösung des Ausgangsmaterials (50 g Polycarbonatabfall in 100 ml Dichlormethan) aufweist.

Relative Lösungsviskosität des Polycarbonats 1,277 (0,5 g Polycarbonat in 100 ml Dichlormethan bei 23 ° C).

Beispiel 6 (Vergleichsbeispiel)

Wie Beispiel 1, aber mit 300 g des unter B. angegebenen Polycarbonatabfalls, 450 g 10%ige Salzsäurelösung ohne Aluminiumpulver.

Eine Lösung des getrockneten und gereinigten Polycarbonats (50 g Polycarbonat in 100 ml Dichlormethan) enthält noch 2/3 des Lackanteils, den eine Vergleichslösung des Ausgangsmaterials (50 g Polycarbonatabfall in 100 ml Dichlormethan) aufweist.

Beispiel 7

Wie Beispiel 1, aber mit 450 g einer 10 %igen Essigsäurelösung. Realtive Lösungsviskosität des Polycarbonats nach dem Windsichten 1,194 (0,5 g Polycarbonat in 100 ml Dichlormethan bei 23 ° C).

Patentansprüche

1. Verfahren zur Reinigung von Abfällen aus thermoplastischen, aromatischen Polycarbonaten und/oder aus thermoplastischen, aromatischen Polyester carbonaten, die bei der Herstellung optischer Formteile anfallen.

2. Verfahren zur Reinigung von Abfällen an thermoplastischen, aromatischen Polycarbonaten und/oder thermoplastischen, aromatischen Polyester carbonaten, die Metalle - gegebenenfalls in Form von Metallsalzen - Lacke und gegebenenfalls Farbstoffe enthalten, dadurch gekennzeichnet, daß man die Abfälle zu Bruchstücken eines mittleren Durchmessers von 0,1 cm bis 5,0 cm, bevorzugt von 0,5 cm bis 1,5 cm, zerkleinert, diese Bruchstücke danach mit Säure am Rückfluß unter Rühren erhitzt, danach mit Wasser unter Rühren solange neutral wäscht und schließlich mit Wasser solange nachspült, bis alle vom Polykondensat abgetrennten Lackanteile ausgespült sind, die Bruchstücke abfiltriert, trocknet und gegebe-

nenfalls durch Windsichten die noch an den Bruchstücken anhaftenden Lack- und/oder Farbstoffreste abtrennt.

5 3. Verwendung von Recyclaten thermoplastischer, aromatischer Polycarbonate und/oder thermoplastischer, aromatischer Polyester carbonate zur Herstellung von Mischungen mit anderen Kunststoffen, bevorzugt zur Herstellung von Mischungen mit ABS und/oder mit SAN.

15

20

25

30

35

40

45

50

55



EINSCHLÄGIGE DOKUMENTE

Kategorie	Kennzeichnung des Dokuments mit Angabe, soweit erforderlich, der maßgeblichen Teile	Betrifft Anspruch	KLASSIFIKATION DER ANMELDUNG (Int. Cl.5)
X	DE-A-3 511 711 (POLYGRAM GMBH) - - -	1	C 08 J 11/06 B 29 B 17/02
Y	DE-A-3 511 711 () * Ansprüche 1,4 *** Seite 5, Zeile 19 - Seite 5, Zeile 32 ** - - -	1,2	
Y	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 123, no. 26, 29. Juni 1981, Columbus, Ohio, US; abstract no. 212203J, SHIKOKU KAKEN KOGYO K.K.: 'SEPARATION OF ALUMINUM FROM ALUMINUM-CONTAINING WASTE PLASTICS' Seite 223 ;Spalte R ; * Zusammenfassung * & JP-B-80 048 088 (SHIKOKU K.K.K.K.) * - - -	1,2	
X	DE-A-1 422 813 (AGFA AG) * Ansprüche 1-3 *** Seite 9, Zeile 12 - Seite 9, Zeile 22 ** - - -	1	
X	CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 112, no. 20, 14. Mai 1990, Columbus, Ohio, US; abstract no. 180875B, RAZINSKAYA I.N. ET AL.: 'PREPARATION OF DECORATIVE COMPOSITES FROM ACRYLIC POLYMER WASTES' Seite 72 ;Spalte R ; * Zusammenfassung ** - - - - -	3	
			RECHERCHIERTE SACHGEBIETE (Int. Cl.5)
			C 08 J B 29 B
Der vorliegende Recherchenbericht wurde für alle Patentansprüche erstellt			
Recherchenort	Abschlussdatum der Recherche	Prüfer	
Den Haag	09 Dezember 91	HALLEMEESCH A.D.	
KATEGORIE DER GENANNTEN DOKUMENTE X : von besonderer Bedeutung allein betrachtet Y : von besonderer Bedeutung in Verbindung mit einer anderen Veröffentlichung derselben Kategorie A : technologischer Hintergrund O : nichtschriftliche Offenbarung P : Zwischenliteratur T : der Erfindung zugrunde liegende Theorien oder Grundsätze		E : älteres Patentdokument, das jedoch erst am oder nach dem Anmeldedatum veröffentlicht worden ist D : in der Anmeldung angeführtes Dokument L : aus anderen Gründen angeführtes Dokument & : Mitglied der gleichen Patentfamilie, übereinstimmendes Dokument	